

PAT-NO: JP02001011634A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2001011634 A

TITLE: **VAPORIZING DEVICE**

PUBN-DATE: January 16, 2001

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
ONO, HIROFUMI	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
LINTEC:KK	N/A

APPL-NO: JP11187734

APPL-DATE: July 1, 1999

INT-CL (IPC): **C23C016/44**, H01L021/31

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a **vaporizing** device to **vaporize** and feed a film forming material to a film forming device such as a CVD on the practical level in the practical use of a ferroelectric memory (FeRAM) using SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub>(SBT), Pb(Zr, Ti)O<sub>3</sub>(PZT), etc., of a non-volatile memory.

SOLUTION: In a liquid material feed part 1A to feed a liquid material 106 carrying a film forming material to a vaporization part 1B, and a **vaporizing** device 100 to heat and **vaporize** the fed liquid material 106, and feed it to a reaction chamber 102 through association of the carrier gas 108, the inner surface of a vaporization space V provided in the vaporization part 1B is formed so that the liquid material 106 flows down from the inlet 7 of the

liquid material 106 toward the outlet 18 of a vaporized material 114, and at least the lower inner surface of the inner surface to constitute the vaporization space V is of retention surface structure to retain the liquid material 106.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-11634

(P2001-11634A)

(43)公開日 平成13年1月16日 (2001.1.16)

(51)Int.Cl.

C 23 C 16/44  
H 01 L 21/31

識別記号

F I

C 23 C 16/44  
H 01 L 21/31

コード(参考)

C 4 K 0 3 0  
B 5 F 0 4 5

審査請求 未請求 請求項の数8 OL (全9頁)

(21)出願番号

特願平11-187734

(22)出願日

平成11年7月1日 (1999.7.1)

(71)出願人 390014409

株式会社リンテック

滋賀県野洲郡中主町大字乙宿字澤588番1

(72)発明者 小野 弘文

滋賀県滋賀郡志賀町小野朝日2丁目4番地

4

(74)代理人 100082429

弁理士 森 義明

Fターム(参考) 4K030 AA11 BA42 EA01 LA02 LA15

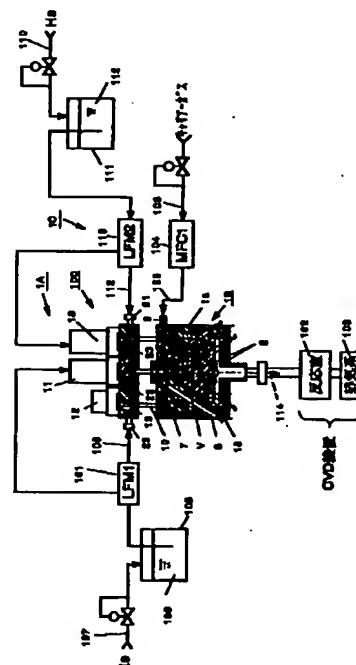
5F045 AB40 EB05 ED02 ED04

(54)【発明の名称】 気化装置

(57)【要約】 (修正有)

【課題】不揮発性メモリーの、SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT)、Pb(Zr, Ti)O<sub>3</sub> (PZT)などを用いた強誘電体メモリー (FeRAM) の実用化において、これらの膜を作成するための成膜原料を実用化レベルでCVDのような成膜装置に気化させて供給するための気化装置を提供する。

【解決手段】成膜原料を担持した液体原料106を気化部1Bに供給する液体原料供給部1Aと、供給された液体原料106を加熱し、気化させると共にキャリヤガス108に随伴させて反応室102に供給する気化装置100において、気化部1B内に設けられた気化空間Vの内面が液体原料106の入口7から気化原料114の出口18に向かって液体原料106が流下するように形成されており、前記気化空間Vを構成する内面の内、少なくとも下側の内面15が液体原料106を滞留させる滞留面構造となっている事を特徴とする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】成膜原料を担持した液体原料を気化部に供給する液体原料供給部と、供給された液体原料を加熱し、気化させると共にキャリヤガスに随伴させて反応室に供給する気化部とで構成された気化装置において、気化部内に設けられた気化空間の内面が液体原料の入口から気化原料の出口に向かって液体原料が流下するよう形成されており、

前記気化空間を構成する内面の内、少なくとも下側の内面が液体原料を滞留させる滞留面構造となっている事を特徴とする気化装置。

【請求項2】請求項1に記載の気化装置において、気化器本体内に末広がりの錐状の気化空間が形成されており、

気化空間の頂部に液体原料の入口とキャリヤガスの噴出孔とが形成され、

気化空間の底部に気化原料の出口が形成され、

前記気化空間を構成する内面の内、少なくとも下側の内面に滞留面構造である凹凸が形成されている事を特徴する気化装置。

【請求項3】請求項1又は2に記載の気化装置において、

気化空間の頂部に液体原料の液溜りが形成されており、前記液溜りに向かって或いは液溜り内にキャリヤガスの噴出孔が配設されている事を特徴する気化装置。

【請求項4】気化空間が、円錐状である事を特徴する請求項2又は3に記載の気化装置。

【請求項5】気化部と液体原料供給部とが熱的に遮断されている事を特徴とする請求項1～4の何れかに記載の気化装置。

【請求項6】請求項1～5の何れかに記載の気化装置において、

溶剤供給装置が液体原料供給部或いは気化部に設置されており、

液体原料の気化部への供給が停止すると溶剤のみが液体原料供給部或いは気化部へ供給されるようになっている事を特徴とする気化装置。

【請求項7】請求項1～6の何れかに記載の気化装置において、

液体原料の入口に連通するようにキャリヤガスの噴出孔が穿設されている事を特徴する気化装置。

【請求項8】請求項1～7の何れかに記載の気化装置において、

錐状気化空間の底部周面に均等に気体原料の出口が形成されており、該出口が被供給側に接続する気体原料排出口に連通している事を特徴する気化装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、液体又は粉体の成膜原料を溶媒に溶解或いは分散させた液体原料を気化さ

せた被供給源に供給する気化装置に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】最近、シリコン集積回路は、素子の微細化と高集積化が急速に進んできている。特にメモリー(DRAM)は、3年で4倍という急速な進歩を遂げている。高密度DRAMにおけるキャパシタ用絶縁膜は、従来の膜に変わってTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が実用化されつつある。さらには、BaSrTiO<sub>3</sub>(BST)などの高誘電率材料の実用化が必須の課題となっている。また、不揮発性メモリーでは、SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub>(SBT)、Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>(PZT)などを用いた強誘電体メモリー(FeRAM)の実用化が進められている。これらを使用した集積回路の実現は最近と予想されるが、まだ解決すべき課題は残っている。

【0003】その中で最も重要かつ本質的課題は、これらの膜を作成するための成膜原料を実用化レベルでCV-Dのような成膜装置に気化させて供給するための気化装置の開発である。

【0004】前記薄膜を作成するための前記成膜原料は液体か固体粉末である。液体原料は一般に沸点が高くその蒸気圧は極めて低く気化が非常に困難である。一方、固体原料は、昇華性のものが多くそのままでは気化できないので、有機溶剤に分散させる方法が一般的である。例えば、BSTの一成分であるBaには、Ba(DPM)<sub>2</sub>という化合物が多く用いられるが、これは白色固体である。これをテトラヒドロフラン(THF)、或いは酢酸ブチルなどの溶剤に分散させた液を使用し、次に述べる方法で気化・供給が試みられて来た。

## 【0005】1) ポンプ圧送法

液体原料を高圧ポンプで圧送し、多数の金属製ディスクを積層した気化器に導入する方法である。気化器内に収納されている積層ディスクの中心には穴があいており、液体原料はそこから外周に向かって流れる。積層ディスクは加熱されており、その間に液体原料は積層ディスクから熱を与えられて気化する。この方式の問題点は、①ポンプを使用しているので、脈動が生じる。②ポンプの寿命が短くトラブルが多い。③積層金属ディスクの間に反応生成物または、溶媒だけが気化し必要な溶質(液体原料)が残渣としてディスク間に残り、100%の気化効率が得られない。④残渣による詰まりが生じる。⑤液体原料を溶した流量が正確に制御できない。⑥前記溶媒液の流量を任意に変更できないなどの多くの問題を有している。

## 【0006】2) 焼結フィルター法

この方法は、液体流量制御器と、加熱された円筒内に焼結フィルターを内蔵したもので、1)のポンプ圧送法と比較すると、⑤⑥の問題は解決できているが、肝心の気化器部分でフィルターの詰まりの問題の発生と、液体の流量制御器との間の配管内のデッドボリュウムによる応答遅れの問題が大きい。そのため、ロストタイムが、生じ、半導体製造装置の主流である枚葉式装置には適さ

いという問題がある。

【0007】強誘電体薄膜を作成するための成膜原料を溶剤に溶解或いは分散させた液体原料を気化させる前記方法はいずれにしても、従来の気化器と比べて前記液体原料を気化させるためには気化領域をはるかに高温にしなければならならず下記に示す種々の課題を抱えている。

#### 【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、①気化領域を高温度にする場合の液体原料の安定な流量制御をいかに達成するかということ、②成膜原料と溶剤の大きな沸点の違いによる分別蒸発（蒸気圧の高い溶剤が先に蒸発し、蒸気圧の低い成膜原料が後に残留してしまう事）をいかにくすかということ、③更にそれに伴う原料残渣（液体原料の供給停止後、装置内に残留した液体原料の内の溶剤が揮散して成膜原料だけが残りこれが残渣となる）による気化装置内部での詰まりを解決すること、④更に、成膜速度を上げるために液体原料の流量増大の要求に対応することなどである。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】「請求項1」は「成膜原料を担持した液体原料(106)を気化部(1B)に供給する液体原料供給部(1A)と、供給された液体原料(106)を加熱し、気化させると共にキャリヤガス(108)に随伴させて被供給側(102)に供給する気化装置(100)において、気化部(1B)内に設けられた気化空間(V)の内面(15)(16)が液体原料(106)の入口(7)から気化原料(114)の出口(18)に向かって液体原料(106)が流下するように形成されており、前記気化空間(V)を構成する内面(15)(16)の内、少なくとも下側の内面(15)が液体原料を滞留させる滞留面構造となっている」事を特徴とする。

【0010】これによれば、気化空間(V)の内面(15)(16)が液体原料(106)の入口(7)から気化原料(114)の出口(18)に向かって液体原料(106)が流下するように形成されているので、入口(7)から気化空間(V)内に入った液体原料(106)は加熱されている気化空間(V)の内面(15)(16)に接触する。

【0011】液体原料(106)の量が少ない時は入口(7)近傍の内面(15)(16)を漏らして液膜を形成した後、全量が気化するが、液体原料(106)の量が多い時は一部の液体原料(106)は入口(7)近傍の内面(15)(16)に接触して気化するが、残部は気化空間(V)の内面(15)(16)に沿って流下しようとする。処が、前記内面(15)(16)は液体原料(106)を滞留させる滞留面構造となっているために直ぐに流下してしまわず、前記内面(15)(16)を徐々にそして溝通なく流れ液膜を形成し且つその一部は滞留し、内面(15)(16)の熱によって徐々に気化する事になる。その結果、液体原料(106)がそのまま流下して気化原料(114)の出口(18)に入り込んで気化原料(114)の供給を妨げ、気化原料(114)の供給量に不安定性を発生させるような事

がなく、常時定常状態での気化原料(114)の供給が可能となる。

【0012】「請求項2」は請求項1に記載の気化装置(100)を更に具体的にしたもので、「気化器本体(1a)内に未広がりの錐状の気化空間(V)が形成されており、気化空間(V)の頂部に液体原料(106)の入口(7)とキャリヤガス(108)の噴出孔(8)とが形成され、気化空間(V)の底部に気化原料(114)の出口(18)が形成され、前記気化空間(V)を構成する内面(15)(16)の内、少なくとも下側の内面(15)に凹凸(R)が形成されている」事を特徴する。

【0013】気化空間(V)の形状は未広がりの錐状で、例えば円錐、角錐などが挙げられる。気化空間(V)の形状を未広がりの錐状とする事で液体原料(114)側の出口(18)に向かって内面(15)(16)の加熱接触面積を増加させる事が出来、流入した液体原料(106)の気化の効率化と完全な気化を計っている。

【0014】「請求項3」は請求項1又は2に記載の気化装置(100)の他の実施例に関し、「気化空間(V)の頂部に液体原料(106)の液溜り(30)が形成されており、前記液溜り(30)に向かって或いは液溜り(30)内にキャリヤガス(108)の噴出孔(8)が配設されている」事を特徴する。

【0015】気化空間(V)の頂部に液体原料(106)の液溜り(30)を形成することで、気化空間(V)に流入した液体原料(106)は一旦ここに溜められ、且つここで噴出孔(8)から噴出したキャリヤガス(108)により徐々に溢出させて気化空間(V)の内面(15)(16)を流れてその上に薄い液膜を迅速に形成するようになる。その結果、高温に保たれている内面(15)(16)からの熱によって液膜の気化が円滑に行われ従来例のような脈動を生じる事なく定常状態で気化原料(114)の供給が行われる。

【0016】「請求項4」は気化空間(V)の形状に関し、「気化空間(V)が、円錐状である」事を特徴するもので、気化空間(V)が円錐状であり、その頂部に液体原料(106)の入口(7)を設ける事により、気化空間(V)内に滴下した液体原料(106)は円錐状の気化空間(V)の内面(15)(16)の全周に沿って均等に流下して液膜を形成するようし、液膜の偏りをなくして均等な気化を実現している。

【0017】「請求項5」は請求項1～4の何れかに記載の気化装置(100)を更に限定したもので、「気化部(1B)と液体原料供給部(1A)とが熱的に遮断されている」事を特徴とする。

【0018】気化部(1B)は滴下した液体原料(106)を加熱して気化させる部分である。これに対して液体原料供給部(1A)は液体原料(106)や溶剤(112)の質量流量を正確に計量して供給する部分である。従って、この部分の温度上昇は機械精度の低下をもたらすだけでなく、特に液体原料(106)内の揮発性溶剤の突沸を誘発させ、気化原料(114)の供給に大きな変動を生じさせる。気化部(1B)

と液体原料供給部(1A)とが熱的に遮断されておれば、前

記述沸現象をなくす事が出来、気化原料(114)の定常的供給を達成する事ができる。

【0019】「請求項6」は請求項1～5の何れかに記載の気化装置(100)の更なる限定に関し、「液体原料供給部(1A)或いは気化部(1B)に溶剤供給装置(1C)が設置されており、液体原料(106)の気化部(1B)への供給が停止すると溶剤(112)のみが液体原料供給部(1A)或いは気化部(1B)へ供給されるようになっている」事を特徴とする。

【0020】液体原料(106)の気化部(1B)への供給が停止すると、液体原料供給部(1A)或いは気化部(1B)内に残っている液体原料(106)内の揮発性溶剤が優先的に揮発して気化しにくい成膜原料のみが残留する。この残留残さが液体原料供給部(1A)或いは気化部(1B)内で凝固すると「詰り」の原因となる。そこで、液体原料(106)の気化部(1B)への供給が停止した時に溶剤(112)のみを液体原料供給部(1A)或いは気化部(1B)へ供給する事で残留した液体原料(106)を洗い流すことで「詰り」の発生をなくす事ができる。

【0021】「請求項7」は請求項1～6の何れかに記載の気化装置(100)におけるキャリヤガス(108)の噴出孔(8)の開口(1)に関し「液体原料(106)の入口(7)に連通するようにキャリヤガス(108)の噴出孔(8)が穿設されている」事を特徴する。

【0022】このようにすれば、入口(7)を通過している液体原料(106)に直接キャリヤガス(108)が吹き込まれて液体原料(106)内に大量の泡が生成され、入口(7)を出た處で大量の小さな泡が発生しその状態で気化空間(V)内に押し出される。そしてその大量の泡は、気化空間(V)の内面(15)(16)に付着して弾け、薄い液膜を生成すると共に内面(15)(16)の熱にて前述同様次第に気化していく。

【0023】「請求項8」は請求項1～7の何れかに記載の気化装置(100)における気体原料(114)の出口(18)に関し「錐状気化空間(V)の底部周面に均等に複数の気体原料(114)の出口(18)が形成されており、該出口(18)が被供給側(102)に接続する気体原料排出口(6)に連通している」事を特徴する。

【0024】これによれば、出口(18)が錐状気化空間(V)の底部周面に均等に形成されているので、錐状気化空間(V)の全周から均等に気化原料(114)が出口(18)に流入し、これが一つに集められて気体原料排出口(6)から被供給側(102)に排出されることになる。従って、錐状気化空間(V)の気化能力の最大限に發揮せる事が出来る。

【0025】

【発明の実施の態様】以下、本発明を図示実施例に従つて説明する。本発明で使用する成膜材料としては、前述のように高密度DRAMにおけるキャパシタ用絶縁膜としては「Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>」や高誘電率材料の「BaSrTiO<sub>3</sub>(BST)」が使用さ

れる。不揮発性メモリー用としては、SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT)、Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> (PZT)などが用いられる。前記成膜原料は、液体か固体粉末である。前述のように液体成膜原料は、一般に沸点が高く蒸気圧は極めて低く、気化が非常に困難である。一方、固体成膜原料としては、例えば Ba(DPM)<sub>2</sub> という化合物が挙げられるが、これを始め固体成膜原料には昇華性のものが多くそのままで気化できないので、有機溶剤 (テトラヒドロフラン(THF)、或いは酢酸ブチルなど) に分散させて使用する。

10 【0026】図1は本発明のプロック図で、液体容器(105)内の前記液体成膜材料又は粉末成膜材料を溶媒に溶解或いは分散させた液 (以下、単に液体原料(106)といふ) は加圧ガス (一般にヘリウムガス(107)) によって加圧され、液体用マスフローメータ(101)に送られる。液体原料用マスフローメータ(101)では、設定された質量流量の液体原料(106)を気化装置(100)に送り出す。

【0027】溶剤容器(111)内の溶剤(112)は、一般的には前記液体原料(106)に使用される溶媒 (勿論、異なるバージ専用の溶剤でもよい) で、前記同様加圧ガス (一般にヘリウムガス(110)) によって加圧され、溶剤用マスフローメータ(113)に送られる。溶剤用マスフローメータ(113)では、設定された質量流量の溶剤(112)を気化装置(100)に送り出す。

【0028】前記気化装置(100)は液体原料供給部(1A)と気化部(1B)とで構成され、気化部(1B)の上に断熱部材を介して液体原料供給部(1A)が載置されている。前記液体原料供給部(1A)は開閉弁(12)、液体原料流量制御バルブ(11)並びに溶剤流量制御バルブ(13)とで構成され、開閉弁(12)は液体原料流量制御バルブ(11)の一方の入口(22)に接続され、溶剤流量制御バルブ(13)は液体原料流量制御バルブ(11)の他方の入口(23)に接続され、更に液体原料流量制御バルブ(11)の出口は導管(9)を介して気化部(1B)の入口(7)に接続されている。

【0029】気化部(1B)にはキャリアガス用マスフローコントローラ(104)を介してキャリヤガス(108)が供給されるようになっている。気化装置(100)で気化された気体原料(114)はキャリヤガス(108)と共にCVD装置の反応室(102) [この部分が被供給側である] に供給される。CVD装置の反応室(102)内は排気系(108)により減圧状態になっている。

【0030】前記気化装置(100)の開閉弁(12)、液体原料流量制御バルブ(11)及び溶剤流量制御バルブ(13)はプレート(19)の上に並設されている。一方、気化部(1B)は断熱部材(10)を介してプレート(19)の下方に離間して配設されており、気化部(1B)の熱が開閉弁(12)、液体原料流量制御バルブ(11)及び溶剤流量制御バルブ(13)側に伝達されないようにしている。本実施例では棒状の断熱部材(10)を使用しているが、当然これに限られず、断熱を満足するものであれば、どのようなもの或いは構造でもよい。

【0031】前記開閉弁(12)の入口(20)は液体原料マスフローメータ(101)に接続されており、所定質量流量の液体原料(106)の供給を受ける。開閉弁(12)は液体原料流量制御バルブ(11)の一方の入口(22)に接続されており、弁操作により液体原料マスフローメータ(101)からの液体原料(106)の液体原料流量制御バルブ(11)への供給・遮断を行う。

【0032】溶剤流量制御バルブ(13)の入口(21)は、溶剤供給装置(1c)の一部を構成する溶剤用液体マスフローメータ(113)に接続されており、所定質量流量の溶剤(112)の供給を受ける。溶剤流量制御バルブ(13)は液体原料流量制御バルブ(11)の他方の入口(23)に接続されており、ここで弁操作により、開閉弁(12)が閉じられて液体原料(106)の供給が停止した時に溶剤用液体マスフローメータ(113)からの溶剤(112)を質量流量制御しながら液体原料流量制御バルブ(11)へ供給して液体原料流量制御バルブ(11)と気化部(1B)とをバージする。(これら液体原料供給部(1A)の作用の詳細に付いては後述する。)なお、前記溶剤供給装置(1c)は、溶剤用液体マスフローメータ(113)及び溶剤容器(111)並びにその付帯設備等で構成されている。

【0033】液体原料流量制御バルブ(11)の出口(24)と気化部(1B)の入口(7)とは導管(9)で接続され、前記液体原料(106)或いはバージ用の溶剤(112)はここを通って気化部(1B)に供給される。

【0034】気化部(1B)は、内部に錐状の空洞が形成された気化部本体(1a)と、前記空洞に収納される上部が錐状の内部気化ブロック(2)と、加熱ヒータ(3)とで構成されている。気化部(1B)の内部には、前記空洞の内壁(この部分を気化空間本体側内面(16)とする)と内部気化ブロック(2)の錐部(2a)の外面(この部分を気化空間ブロック側内面(15)とする)との間に錐状の気化空間(V)が形成される事になる。

【0035】前記錐状の気化空間(V)の形状は、本実施例では円錐をその代表例とするが、角錐或いは坊錐形、半球状であってもよく、要するに気化部(1B)内に設けられた気化空間(V)の内面(15)(16)が液体原料(106)の入口(7)から気化原料(114)の出口(18)に向かって液体原料(106)が流下するように形成されておれば足る。このように言えば、錐状でなくともよく例えば「斜めにした洗濯板状」のものでもよい。

【0036】この気化空間(V)の下端より少し上の部分に出口(18)が形成されており、前記出口(18)が気化部(1B)の底部に形成された気体原料排出口(6)を介してCVD装置の反応室(102)に接続されている。そして気化空間(V)の下端の前記出口(18)より下の部分(この部分を気化空間(V)の底溝部(17)とする)が何らかの都合で大量の液体原料(106)が供給され、気化しきれずに溢れた時の緊急避難的な液漏りとなるようにしてある。

【0037】前記出口(18)は気化空間(V)の底溝部(17)

に1箇所だけ設けていてもよいが、気化空間(V)の底部周面に均等に複数の気体原料(114)の出口(18)を形成しておけば、錐状気化空間(V)の全周から均等に気化原料(114)が出口(18)に流入し、これが一つに集められて気体原料排出口(6)から被供給側(102)に排出される事になり、錐状気化空間(V)の気化能力の最大限に発揮される事が出来るようになる。

【0038】加熱ヒータ(3)は前記気化空間(V)を挟むよう気化部本体(1a)並びに内部気化ブロック(2)に適宜配設されており、気化空間(V)を内外から加熱するようになっている。

【0039】気化部本体(1a)の上面に形成されている入口(7)は気化空間(V)の先端に繋がっており、導管(9)内を通ってきた前記液体原料(106)或いは溶剤(112)はここから気化空間(V)内に導入される。

【0040】前記入口(7)の周囲にはリング状通孔(26)が形成されており、キャリヤガス入口(5)に連通しており、更に前記リング状通孔(26)から気化空間(V)の頂部に開口しているキャリヤガス噴出孔(8)が多数穿設されており、入口(7)から気化空間(V)内に流入してきた液体原料(106)或いは溶剤(112)にキャリヤガス(108)を軽く吹き付けるようになっている。

【0041】気化空間(V)を構成する気化空間ブロック側内面(15)と気化空間本体側内面(16)の面形状は、入口(7)から気化空間(V)内に流入してきた液体原料(106)が即座に流下しないように特殊な加工が施してある。

【0042】その一例を示すと、図3に示すように気化空間ブロック側内面(15)と気化空間本体側内面(16)に同心円にて多数の断面半円状のリング或いは図4に示すように同心円にて多数の断面段状のリング(R)(勿論、これだけに限られるものでなく粗面化したりメッシュ状(金網状)に、半球或いは錐状の溝を多数形成したりしてもよく、要するに液体原料(106)の流下が阻害できるような凹凸構造或いは表面加工がなされておればよい)が形成されている。

【0043】次に、本発明の作用について説明する。液体原料(106)の反応室(102)への供給を行う場合に付いて説明する。この場合は、開閉弁(12)は開状態に保持され液体原料(106)は液体原料流量制御バルブ(11)に供給されるようになっている半面、溶剤流量制御バルブ(13)は閉じており、溶剤(112)は供給されないようになっている。

【0044】液体容器(105)内の前記液体原料(106)は加圧ガス(107)によって加圧され、液体用マスフローメータ(101)に送られ、設定された質量流量の液体原料(106)を開閉弁(12)に送り出す。開閉弁(12)は前述のように開状態であるから、液体原料(106)は開閉弁(12)をそのまま通過して液体原料流量制御バルブ(11)に至る。液体原料流量制御バルブ(11)には液体用マスフローメータ(101)から質量流量制御信号が送られており、前記制御

信号に合わせて弁開度を調節し、液体原料流量制御バルブ(11)を所定の質量流量だけの液体原料(106)が気化部(1B)に供給される。

【0045】液体原料流量制御バルブ(11)の出口(24)から流出した液体原料(106)は導管(9)を通じて気化部(1B)に送られ、気化空間(V)の頂部に開口している入口(7)から気化空間(V)内に滴下する。前記入口(7)の周囲にはキャリヤガス噴出孔(8)が多数穿設されており、入口(7)から気化空間(V)内に流入して来、そして質量流量制御がなされた液体原料(106)にキャリヤガス(108)を吹き付け、入口(7)の周辺に液滴を飛散させる。その一部は入口(7)付近に付着し、残部はそのまま落下して内部気化プロック(2)の錐部(2a)の頂点を漏らし周囲に円形に均等に滴下して液膜を形成する。

【0046】一方、前記入口(7)付近で液体原料(106)の一部は気化するが、残部はその周囲の内面(15)(16)に付着し、或いは流下して液膜を形成する。この時、液体原料(106)の流下量が多い場合、内面(15)(16)に形成された断面半円状のリング(R)内に捕えられてその一部がリング(R)内を広がりつつ此処に溜め込まれる。このリング(R)は同心円状にて何重にも形成されているので、通常の場合は、滴下した液体原料(106)は気化空間(V)の底溝部(17)まで達する事なく全て内面(15)(16)に付着して液膜を構成する事になる。

【0047】前記内面(15)(16)は加熱ヒータ(3)にて加熱されているので、内面(15)(16)に付着した液膜は直ちに昇温し、気化しやすい溶剤成分は勿論、気化しにくい成膜成分もたちどころに気化する。気化した気化原料(14)は気化空間(V)に流入したキャリヤガス(108)に随伴されて出口(18)を通り、反応室(102)に供給される。

【0048】このように液体原料(106)は當時、一定の質量流量が厳密にコントロールされて供給するようになっているが、何らかの原因で液体原料(106)が過剰に供給されて溢れる可能性がある。その場合は気化空間(V)の底溝部(17)の液溜りに溜まり、出口(18)に流入しないようになっている。この底溝部(17)に溜まった液体原料(106)は徐々に気化される。これにより、万一このような状態になったときでも気化原料(114)の供給路が閉塞されたり、甚だしくは気化されずに液体原料(106)が反応室(102)に送り込まれる事がないようにしている。

【0049】液体原料(106)の供給が完了すると、開閉弁(12)が閉じ、液体原料流量制御バルブ(11)への液体原料(106)の供給が停止されると同時に液体原料流量制御バルブ(11)が全開し、且つ溶剤流量制御バルブ(13)が開く。これにより、バージ用の溶剤(112)が加圧ガス(110)によって溶剤容器(111)から圧送され、溶剤用マスフローメータ(113)からの質量流量制御信号によって溶剤流量制御バルブ(13)の弁開度が制御されて流量制御されつつ全開状態の液体原料流量制御バルブ(11)に送られ、バージ用の溶剤(112)が通流した部分を洗浄する。

【0050】液体原料流量制御バルブ(11)を通流したバージ用の溶剤(112)はそのまま気化部(1a)の気化空間(V)に流入し、気化空間(V)内で気化しキャリヤガス(108)と混合して内面(15)(16)並びにその表面に形成されているリング(R)をフラッシング洗浄し、気化しにくい成膜成分も含めて付着している残留液体原料(106)を全て洗い流す。これにより、従来問題となっていた使用後の気化装置の詰り問題も完全に解消する事が出来るようになった。

10 【0051】図5は、気化空間(V)の内面(15)(16)が段状のリング(R)で構成され、且つ液体原料(106)の入口(7)に連通するようにキャリヤガス(108)の噴出孔(8)が穿設されている。このようにすれば、入口(7)を通過している液体原料(106)に直接キャリヤガス(108)が吹き込まれて液体原料(106)内に大量の泡が生成され、入口(7)を出た處で大量の小さな泡が発生しその状態で気化空間(V)内に押し出される。そしてその大量の泡は、気化空間(V)の内面(15)(16)に付着して弾け、薄い液膜を生成すると共に内面(15)(16)の熱にて前述同様次第に気化していく。前記段状のリング(R)は泡が弾けて液膜となつた時に滴下するのを妨げる役目をなす。

【0052】次に、図6に従って、本発明に係る気化装置(100)の第2実施例について説明する。この場合は気化空間(V)を構成する内部気化プロック(2)の錐部(2a)の頂部に液体原料(106)の液溜り(30)が形成され、その液溜り(30)に向かって或いは液溜り(30)内にキャリヤガス(108)の噴出孔(8)が配設されているものである。図の場合は、導管(9)を取り巻くノズル(5a)が液溜り(30)内に挿入され、液溜り(30)内に溜まった液体原料(106)をバーリングするようになっている。

【0053】バーリングされた液体原料(106)の一部は、液溜り(30)から溢出させて気化空間(V)の内面(15)(16)を流れその上に薄い液膜を迅速に形成する。気化空間(V)を形成する内面(15)(16)は高温に保たれているからその熱によって液膜の気化が円滑に行われる事になる。

【0054】また、図2は本発明のフローの第2実施例で、図1と異なる処は溶剤流量制御バルブ(13)が溶剤側開閉バルブ(12b)となっており、これが液体原料側開閉バルブ(12a)と共に左右にて流量制御バルブ(11)【この場合、流量制御バルブ(11)は液体原料(106)と溶剤(112)とを制御することになるので、単に流量制御バルブという名称にしている】に接続されている。そして液体原料用マスフローメータ(101)及び溶剤用マスフローメータ(113)から導出された信号ラインがスイッチ(SW)で端子(Sa)(Sb)との間で切替可能となっている。

【0055】この場合、液体原料(106)を供給する場合、液体原料側開閉バルブ(12a)を開き溶剤側開閉バルブ(12b)を閉じる。そして、スイッチ(SW)を端子(Sa)側に接続し、流量制御バルブ(11)の信号ラインを液体原料

11

用マスフローメータ(101)と接続して流量制御信号を液体原料用マスフローメータ(101)から受けるようする。これにより、流量制御バルブ(11)は液体原料用マスフローメータ(101)からの流量制御信号に従って弁開度が制御される事になる。

【0056】液体原料(106)の供給が終了すると、逆に液体原料側開閉バルブ(12a)を閉じ溶剤側開閉バルブ(12b)を開く。そしてスイッチ(SW)を端子(Sb)側に切替え、流量制御バルブ(11)の信号ラインを溶剤用マスフローメータ(113)と接続して流量制御信号を溶剤用マスフローメータ(113)から受けるようする。これにより、流量制御バルブ(11)は溶剤用マスフローメータ(113)からの流量制御信号に従って弁開度が制御される事になる。前記以外の点は図1の場合と同一であるので、その詳細は省略する。

【0057】[実験結果] 同一寸法の気化装置3種類(A)(B)(C)を用いて比較試験を実施した結果、本発明における「滞留面構造」の効果は表1の通りであった。

1) 実験方法 液体原料(106)を前記気化装置(A)(B)(C)に供給し、気体原料排出口(6)から排出された気体原料(114)を液体窒素で冷却して凝固させ、これを電子天秤で秤量した。

2) 実験条件

気化器種類	気化器温度	キャリアーガス流量	最大気化能力液体流量
A	250C	2008CCM	0.1g/min
B	250C	2008CCM	0.2g/min
C	250C	2008CCM	0.8g/min

【0059】1) 気化可能流量：気化装置(A)に比べ本発明の気化装置(B)は2倍に向上し、「滞留面構造」の効果が実証された。ただし、この場合は図5の気化部下部の側面に1箇所の気体原料排出口を設けたものであるので、気体原料排出口近傍部分では良く排出されるものの、離れている部分は排出能力が落ち、全体として均等に排出されなかつたため気化可能流量は2倍程度になった。そこで図5のように出口(18)の構成を検討することで気体原料(114)の排出能力を向上させることで、気化装置(A)に比べ本発明の気化装置(C)は5倍に向上した。流量はウェハーサイズの拡大並びに成膜速度の向上に伴つて増大化の要求が強い。本発明の気化装置(100)である(B)は勿論、特に(C)では、その要求に応える事が出来る。

2) 気化温度：強誘電体薄膜の原料化合物は、一般的に高沸点であるので、高温度での気化が必要である。しかし、高温度では熱分解しやすい。そのため気化効率が向上すれば、比較的低温度での気化が可能となり、その点でも本発明は有利である。

【0060】

【発明の効果】本発明によれば、気化空間の内面が液体原料の入口から気化原料の出口に向かって液体原料が流下するように形成され、且つその内面は液体原料を滞留※50

12

\* ① 液体成膜原料；Ba(DPM)<sub>2</sub>、Sr(DPM)<sub>2</sub>、ある種のアクト化合物の酢酸ブチル溶液混合液 濃度 各0.15M

② 気化能力評価方法；液体窒素 コールドトラップ、電子天秤による秤量法

気化装置(A)；気化部の気化空間の内面は平坦な円錐面で、気化空間に連通する気体原料排出口は気化部下部の側面に1箇所設けられており、この部分から気化原料を外部に取り出した。(気化装置(A)は図示せず。)

10 気化装置(B)；気化部の円錐状の気化空間の内面には階段状凹凸リングが加工されており、気化空間に連通する気体原料排出口は気化部下部の側面に1箇所設けられており、この部分から気化原料を外部に取り出した。(気化装置(B)も図示していないが、図4の気化部下部の側面に1箇所の気体原料排出口を設けたものである。)

14 気化装置(C)；気化部(1B)の円錐状の気化空間(V)の内面には階段状凹凸リング(R)が加工されており、気化空間(V)の底部に設けられ、気体原料排出口(6)に連通孔する出口(18)が均等に4箇所設けられている。気化原料(1)は気体原料排出口(6)から取り出される。(図5参考)

20 3) 気化能力測定結果

【0058】

\* 【表1】

※させる滞留面構造、例えば凹凸となつてあるために、気化空間に流入した液体原料は直ぐに流下しまわらず、

30 前記内面に滞留し、たとえ気化しにくい成膜成分を含んでいたとしても成膜成分も含めて徐々に気化する事になる。その結果、気化原料の供給量に不安定性を発生させるような事がなく、常時定常状態での気化原料の供給が可能となる。

【0061】また、気化空間の形状を未広がりの錐状とする事で、気体原料側の出口に向かって加熱接触面積を増加させる事が出来、流入した液体原料の気化の効率化と完全な気化を計る事が出来る。

40 【0062】また、気化空間の頂部に液体原料の液溜りを形成することで、気化空間の内面上に薄い液膜を迅速に形成する事が出来ようになり、円滑な液膜の気化による定常状態での気化原料の供給を実現する事が出来る。

【0063】更に、気化空間の形状を「円錐状」にする事で、気化空間内に滴下した液体原料が内面を均等に流下して均等な液膜を形成するようする事が出来る。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1実施例のブロック図

【図2】本発明の第2実施例のブロック図

【図3】本発明に係る気化装置の気化部の断面図

13

【図4】図2の気化空間を主として表わした気化部の部分拡大断面図

【図5】図3の他の実施例の部分拡大断面図

【図6】図3の更に他の実施例で、液滴りが形成された時の部分拡大断面図

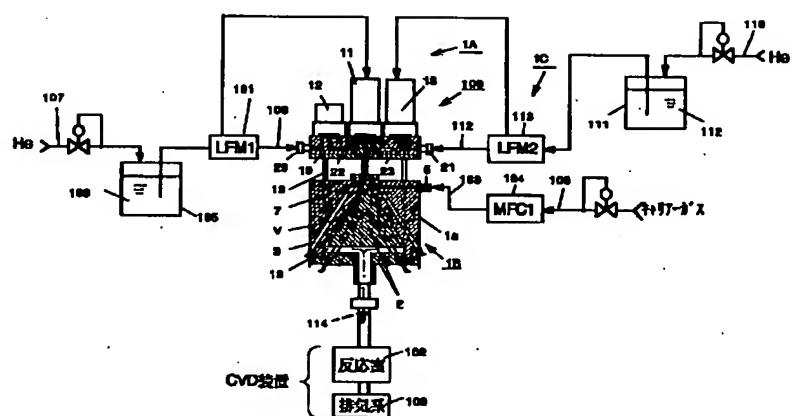
【記号の説明】

- (100) 気化装置
- (102) 反応室
- (106) 液体原料
- (108) キャリヤガス
- (112) 溶剤
- (114) 気化原料

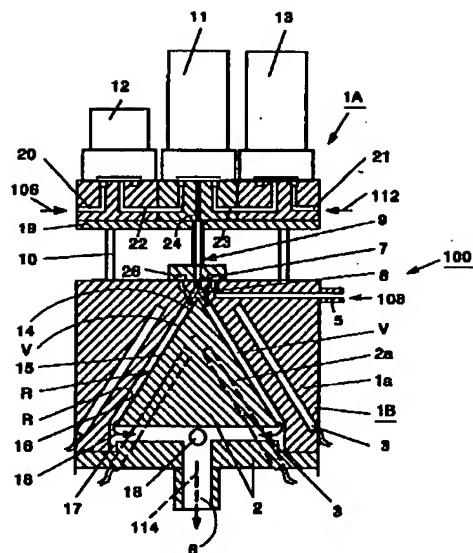
14

- (1A) 液体原料供給部
- (1B) 気化部
- (1C) 溶剤供給装置
- (V) 気化空間
- (R) 凹凸
- (1a) 気化器本体
- (7) 入口
- (8) 噴出孔
- (15) (16) 内面
- 10 (18) 出口
- (30) 液滴り

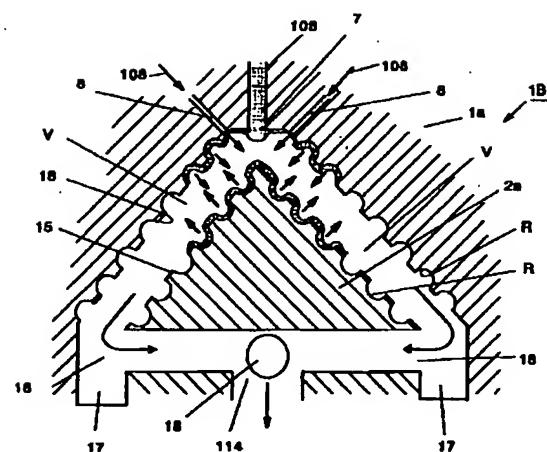
【図1】



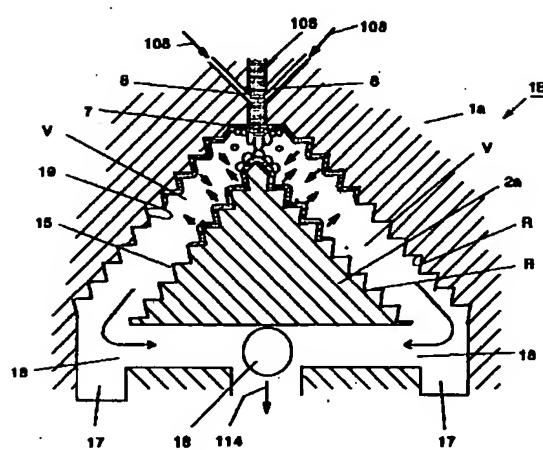
【図3】



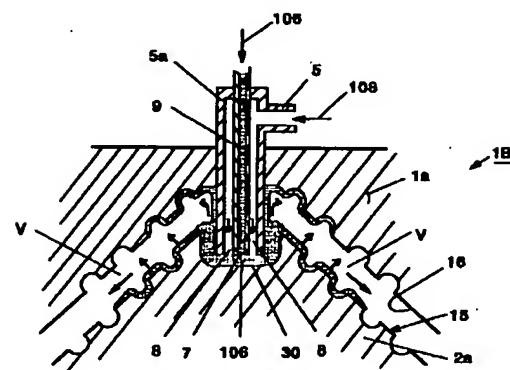
【図4】



【図5】



【図6】



**Disclaimer:**

This English translation is produced by machine translation and may contain errors. The JPO, the INPI, and those who drafted this document in the original language are not responsible for the result of the translation.

**Notes:**

1. Untranslatable words are replaced with asterisks (\*\*\*\*).
2. Texts in the figures are not translated and shown as it is.

Translated: 09:48:03 JST 06/27/2007

Dictionary: Last updated 05/18/2007 / Priority:

---

**CLAIMS**

---

**[Claim(s)]**

[Claim 1] In the evaporation equipment which consisted of a liquid material provisioning part which supplies the liquid materials which supported membrane formation materials to an evaporation part, and an evaporation part which is made to accompany to carrier gas and is supplied to a reaction room while heating the supplied liquid materials and making it evaporate. Evaporation equipment characterized by the lower inside having at least the stay side structure of making liquid materials stagnating, among the insides which the inside of the evaporation space established in evaporation circles is formed so that liquid materials may flow down toward the exit of evaporation materials from the entrance of liquid materials, and constitute said evaporation space.

[Claim 2] in evaporation equipment according to claim 1 -- the inside of a vaporizer main part -- an end -- the gimlet of a spread -- [ the evaporation space of the \*\* is formed and ] Evaporation equipment which carries out the feature of the entrance of liquid materials and the jet hole of carrier gas being formed in the top part of evaporation space, the exit of evaporation materials being formed in the bottom of evaporation space, and the unevenness which is stay side structure being formed in a lower inside at least among the insides which constitute said evaporation space.

[Claim 3] Evaporation equipment which carries out the feature of \*\*\*\*\* of liquid materials being formed in the top part of evaporation space, and the jet hole of carrier gas being arranged in \*\*\*\*\* toward said \*\*\*\*\* in evaporation equipment according to claim 1 or 2.

[Claim 4] Evaporation equipment according to claim 2 or 3 which carries out the feature of evaporation space being a cone-like.

[Claim 5] Evaporation equipment given in any [ Claim 1 characterized by intercepting the evaporation part and the liquid material provisioning part thermally - ] of four they are.

[Claim 6] Evaporation equipment characterized by supplying only a solvent to a liquid material provisioning part or an evaporation part if the solvent feed unit is installed in the liquid material provisioning part or the evaporation part and supply in the evaporation part of liquid materials stops in evaporation equipment given

in any [ Claim 1 - ] of five they are.

[Claim 7] Evaporation equipment which carries out the feature of the jet hole of carrier gas being drilled in evaporation equipment given in any [ Claim 1 - ] of six they are so that it may be open for free passage at the entrance of liquid materials.

[Claim 8] in evaporation equipment given in any [ Claim 1 - ] of seven they are -- a gimlet -- the evaporation equipment which carries out the feature of the exit of gas materials being equally formed in the bottom peripheral surface of the \*\* evaporation space, and this exit being open for free passage to the gas materials outlet linked to a supply side.

## DETAILED DESCRIPTION

---

### [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the evaporation equipment supplied to the source of supply which made the liquid materials which made the solvent dissolve or distribute the membrane formation materials of a liquid or a granular material evaporate.

[0002]

[Description of the Prior Art] The miniaturization of an element and high integration of the silicon integrated circuit have been progressing quickly recently. Especially the memory (DRAM) has accomplished the rapid progress of 4 times in three years. high-density DRAM -- the insulating film for capacitors to kick changes to the conventional film, and Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> are being put in practical use. Furthermore, utilization of high dielectric constant material, such as BaSrTiO<sub>3</sub> (BST), has been an indispensable technical problem. Moreover, in nonvolatile memory, utilization of the ferroelectric random-access memory (FeRAM) which used SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT), Pb(Zr, Ti) O<sub>3</sub> (PZT), etc. is advanced. Although realization of the integrated circuit which uses these is expected to be \*\*\*\*, the technical problem which should still be solved remains.

[0003] It is development of the most important in it, and the evaporation equipment for making membrane formation equipment like CVD evaporate membrane formation materials for an essential technical problem to create these films, and supplying them on a utilization level.

[0004] Said membrane formation materials for creating said thin film are liquid or solid powder. Generally, \*\*\*\* is high, the steam pressure is very low, and liquid materials are very difficult to evaporate. On the other hand, since they are not vaporizable if many things of sublimation nature remain as they are as for solid materials, its method which the organic solvent is made to distribute is common. For example, this is a white solid although many compounds called Ba(DPM)<sub>2</sub> are used for Ba which is one ingredient of BST. The liquid which made solvents, such as a tetrahydro franc (THF) or butyl acetate, distribute this was used, and evaporation and supply have been tried by the method described below.

[0005] 1) It is the method of introducing into the vaporizer which fed the pump feeding method liquid materials with the high-pressure pump, and laminated many metal disks. The hole has opened in the center of the lamination disk stored in the vaporizer, and liquid materials flow toward the perimeter from there. The

lamination disk is heated, and liquid materials give and evaporate heat from a lamination disk between them. Since \*\* pump is being used for the problem of this method, pulsation produces it. \*\* The life of a pump is short and there are many troubles. \*\* Only a reaction product or a solvent evaporates between laminated metal disks, required \*\*\*\* (liquid materials) remains between disks as a residual substance, and the evaporation efficiency of 100% is not acquired. \*\* \*\*\*\*\* by a residual substance arises. \*\* The flux which melted liquid materials cannot control correctly. \*\* It has many problems of being unable to change flux of said solvent liquid arbitrarily.

[0006] 2) although sintered filter method this gentleman methods are a liquid flow rate controller and the thing which built in the sintered filter in the heated cylinder and the problem of \*\*\*\* is solvable as compared with the pump feeding method of 1 The problem of a response delay according in an important vaporizer portion to the dead volume in piping between generating of the problem of the \*\*\*\* ball of a filter and the flux controller of a liquid is large. Therefore, lost time arises and there is a problem of not being suitable in the sheet type equipment which is the mainstream of semiconductor fabrication machines and equipment.

[0007] If said method of making the liquid materials which made the solvent dissolve or distribute the membrane formation materials for creating a ferroelectric thin film evaporate does not make an evaporation field high temperature far anyway in order to make said liquid materials evaporate compared with the conventional vaporizer and it is \*\*\*\*, it is holding the various technical problems shown in \*\*\*\*\*.

[0008]

[Problem to be solved by the invention] It says [ how the technical problem of this invention attains stable flux control of the liquid materials in the case of making \*\* evaporation field into high temperature ], \*\* Say [ how the judgment evaporation (the high solvent of steam pressure evaporates previously and the low membrane formation materials of steam pressure remain behind) by the difference in big \*\*\*\* of membrane formation materials and a solvent is abolished ], \*\* Solve further \*\*\*\*\* inside the evaporation equipment by the materials residual substance (the solvent of the liquid materials which remained after the supply interruption of liquid materials and in equipment vaporizes, only membrane formation materials remain, and this serves as a residual substance) accompanying it, \*\* It is catering to the demand of flux increase of liquid materials further, in order to gather membrane formation speed etc.

[0009]

[Means for solving problem] ""Claim 1" The liquid material provisioning part which supplies the liquid materials (106) which supported membrane formation materials to an evaporation part (1B) (1A), In the evaporation equipment (100) which heats the supplied liquid materials (106), is made to accompany to carrier gas (108) and is supplied to a supply side (102) while making it evaporate The inside (15) of the evaporation space (V) prepared in the evaporation part (1B) and (16) are formed so that liquid materials (106) may flow down toward the exit (18) of evaporation materials (114) from the entrance (7) of liquid materials (106). A lower inside (15) is characterized by" used as the stay side structure of making liquid materials stagnating, at least among the inside (15) which constitutes said evaporation space (V), and (16). [0010] Since according to this the inside (15) of evaporation space (V) and (16) are formed so that liquid

materials (106) may flow down toward the exit (18) of evaporation materials (114) from the entrance (7) of liquid materials (106). The liquid materials (106) which entered in evaporation space (V) from the entrance (7) contact the inside (15) of the evaporation space (V) currently heated, and (16).

[0011] [ when there is little quantity of liquid materials (106), after wetting the inside (15) near the entrance (7), and (16) and forming a liquid film, the whole quantity evaporates, but ] When there is much quantity of liquid materials (106), some liquid materials (106) contact the inside (15) near the entrance (7), and (16), and are evaporated, but the remainder tends to flow down along with the inside (15) of evaporation space (V), and (16). Since said inside (15) and (16) have the stay side structure of making liquid materials (106) stagnating, a place does not flow down immediately. It will flow through said inside (15) and (16) gradually and uniformly, and a liquid film will be formed, and the part will stagnate, and it will evaporate gradually with the heat of an inside (15) and (16). As a result, supply of the evaporation materials (114) in a stationary state is always attained so that liquid materials (106) may flow down as it is, the exit (18) of evaporation materials (114) may be entered, supply of evaporation materials (114) may be barred and the amount of supply of evaporation materials (114) may not be made to generate instability.

[0012] "Claim 2" is what made still more concrete evaporation equipment (100) according to claim 1. the inside of "vaporizer main part (1a) -- an end -- the gimlet of a spread -- [ the evaporation space (V) of the \*\* is formed and ] The jet hole (8) of the entrance (7) of liquid materials (106) and carrier gas (108) is formed in the top part of evaporation space (V). The feature of" by which the exit (18) of evaporation materials (114) is formed in the bottom of evaporation space (V), and unevenness (R) is formed at least in the lower inside (15) among the inside (15) which constitutes said evaporation space (V), and (16) is carried out.

[0013] the form of evaporation space (V) -- an end -- the gimlet of a spread -- it is a \*\* and a cone, a pyramid, etc. are mentioned, for example. the form of evaporation space (V) -- an end -- the gimlet of a spread -- the heating contact surface product of an inside (15) and (16) could be made to increase gradually toward the exit (18) by the side of gas materials (114) by considering it as a \*\*, and the increase in efficiency of evaporation of the liquid materials (106) which flowed, and perfect evaporation are measured.

[0014] "Claim 3" is related with other working examples of evaporation equipment (100) according to claim 1 or 2. The feature of \*\*\*\*\* (30) of liquid materials (106) is formed in the top part of evaporation space (V), and the jet hole (8) of carrier gas (108) is arranged in \*\*\*\*\* (30) toward said \*\*\*\*\* (30)" is carried out.

[0015] [ forming \*\*\*\*\* (30) of liquid materials (106) in the top part of evaporation space (V) ] It is made to \*\*\*\* gradually the liquid materials (106) which flowed into evaporation space (V) by the carrier gas (108) which was once accumulated here and blew off from the jet hole (8) here, they flow through the inside (15) of evaporation space (V), and (16), and come to form a thin liquid film quickly on it. As a result, supply of evaporation materials (114) is performed by a stationary state, without evaporation of a liquid film being smoothly performed by the heat from the inside (15) currently maintained at high temperature, and (16), and producing pulsation like the conventional example.

[0016] "Claim 4" is what carries out the feature of "evaporation space (V) is a cone-like" about the form of evaporation space (V). By evaporation space's (V's)'s being a cone-like and establishing the entrance (7) of

liquid materials (106) in the top part. The liquid materials (106) dropped in evaporation space (V) flowed down equally in accordance with all the circumferences of the inside (15) of conic evaporation space (V), and (16), formed the liquid film, abolished the deviation of the liquid film, and have realized equal evaporation.

[0017] "Claim 5" is what limited further evaporation equipment (100) given in any [ Claim 1 - ] of four they are, and is characterized by "intercepting thermally the evaporation part (1B) and the liquid material provisioning part (1A)."

[0018] An evaporation part (1B) is a portion which makes the dropped liquid materials (106) heat and evaporate. On the other hand, a liquid material provisioning part (1A) is a portion which measures correctly the mass flow rate of liquid materials (106) or a solvent (112), and supplies it. Therefore, the rise in heat of this portion makes \*\*\*\* of the volatile solvent in liquid materials (106) induce, and makes supply of evaporation materials (114) it not only to bring about the fall of machine accuracy, but produce a big change especially. If the evaporation part (1B) and the liquid material provisioning part (1A) are intercepted thermally, said \*\*\*\* phenomenon can be abolished and steady supply of evaporation materials (114) can be attained.

[0019] "Claim 6" is related with the further limitation of evaporation equipment (100) given in any [ Claim 1 - ] of five they are. It is characterized by "supplying only a solvent (112) to a liquid material provisioning part (1A) or an evaporation part (1B), if the solvent feed unit (1C) is installed in the liquid material provisioning part (1A) or the evaporation part (1B) and supply in the evaporation part (1B) of liquid materials (106) stops."

[0020] If supply in the evaporation part (1B) of liquid materials (106) stops, only the membrane formation materials which the volatile solvent in the liquid materials (106) which remain in the liquid material provisioning part (1A) or the evaporation part (1B) volatilizes preferentially, and are hard to evaporate will remain. If this remains \*\*\*\* solidifies within a liquid material provisioning part (1A) or an evaporation part (1B), it will become the cause of "getting it blocked." Then, when supply in the evaporation part (1B) of liquid materials (106) stops, generating of "getting it blocked" can be lost by flushing the liquid materials (106) which remained by supplying only a solvent (112) to a liquid material provisioning part (1A) or an evaporation part (1B).

[0021] "Claim 7" carries out the feature of "the jet hole (8) of carrier gas (108) being drilled so that it may be open for free passage at the entrance (7) of liquid materials (106)" about the opening (1) of the jet hole (8) of the carrier gas (108) in evaporation equipment (100) given in any [ Claim 1 - ] of six they are.

[0022] If it does in this way, direct carrier gas (108) will be blown into the liquid materials (106) which have passed through the entrance (7), a lot of small bubbles will be generated in the place which a lot of bubbles were generated and came out of the entrance (7) in liquid materials (106), and it will be pushed out in evaporation space (V) in the state. And the bubbles of a lot of adhere to the inside (15) of evaporation space (V), and (16), burst, and they are gradually evaporated like the above-mentioned with the heat of an inside (15) and (16) while they generate a thin liquid film.

[0023] "Claim 8" is related with the exit (18) of the gas materials (114) in evaporation equipment (100) given in any [ Claim 1 - ] of seven they are -- "-- a gimlet -- [ the exit (18) of two or more gas materials (114) is equally formed in the bottom peripheral surface of the \*\* evaporation space (V), and ] This exit (18) carries out the feature of" which is open for free passage to the gas materials outlet (6) linked to a supply side (102).

[0024] according to this -- an exit (18) -- a gimlet -- since it is equally formed in the bottom peripheral surface of the \*\* evaporation space (V) -- a gimlet -- evaporation materials (114) flow into an exit (18) equally from all the circumferences of the \*\* evaporation space (V), and this will be brought together in one and will be discharged by the supply side (102) from a gas materials outlet (6). therefore, a gimlet -- the maximum of the evaporation capability of the \*\* evaporation space (V) can be demonstrated.

[0025]

[The mode of implementation of invention] This invention is hereafter explained according to an illustration working example. as the membrane formation material used by this invention -- above -- high-density DRAM -- as an insulating film for capacitors to kick, "Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>" and "BaSrTiO<sub>3</sub> (BST)" of high dielectric constant material are used. as the object for nonvolatile memory -- SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT) Pb(Zr, Ti) O<sub>3</sub> (PZT) etc. -- it is used. Said membrane formation materials are liquid or solid powder. As mentioned above, generally \*\*\*\* of steam pressure is very low highly, and liquid membrane formation materials are very difficult to evaporate. On the other hand, although a compound called Ba(DPM)<sub>2</sub> is mentioned as solid membrane formation materials, for example, since it is not vaporizable if this is begun and many things of sublimation nature remain as they are in solid membrane formation materials, it is used, distributing organic solvents (a tetrahydro franc (THF) or butyl acetate).

[0026] The liquid which drawing 1 is [ liquid ] the block diagram of this invention, and made the solvent dissolve or distribute said liquid membrane formation material or powder membrane formation material in a liquid container (105) (It is only hereafter called liquid materials (106)) is pressurized by pressurization gas (generally gaseous helium (107)), and it is sent to the mass flow meter (101) for liquids. In the mass flow meter (101) for liquid materials, the liquid materials (106) of the set-up mass flow rate are sent out to evaporation equipment (100).

[0027] the solvent (112) in a solvent container (111) is the solvent (of course, a different solvent only for a purge is sufficient) generally used for said liquid materials (106) -- said -- it is similarly pressurized by pressurization gas (generally gaseous helium (110)), and is sent to the mass flow meter (113) for solvents. In the mass flow meter (113) for solvents, the solvent (112) of the set-up mass flow rate is sent out to evaporation equipment (100).

[0028] Said evaporation equipment (100) consists of a liquid material provisioning part (1A) and an evaporation part (1B), and the liquid material provisioning part (1A) is laid through the heat insulation member point on the evaporation part (1B). Said liquid material provisioning part (1A) consists of an opening-and-closing valve (12) liquid materials flux control valve (11) and a solvent flux control valve (13). An opening-and-closing valve (12) is connected to one entrance (22) of a liquid materials flux control valve

(11). A solvent flux control valve (13) is connected to the entrance (23) of another side of a liquid materials flux control valve (11), and the exit of the liquid materials flux control valve (11) is further connected to the entrance (7) of an evaporation part (1B) through the lead pipe (9).

[0029] Carrier gas (108) is supplied to an evaporation part (1B) through the massflow controller (104) for KIARIAGASU. The gas materials (114) evaporated with evaporation equipment (100) are supplied to the reaction room (102) [this portion is a supply side] of CVD equipment with carrier gas (108). The inside of the reaction room (102) of CVD equipment is in the decompression state by the exhaust air system (108).

[0030] The opening-and-closing valve (12) liquid materials flux control valve (11) and solvent flux control valve (13) of said evaporation equipment (100) are installed side by side on the plate (19). On the other hand, through the heat insulation member (10), an evaporation part (1B) is estranged under the plate (19), and is arranged, and the heat of an evaporation part (1B) is made not to be transmitted to the opening-and-closing valve (12) liquid materials flux control valve (11) and solvent flux control valve (13) side. Although the cylindrical heat insulation member (10) is used in this example, as long as it naturally is not restricted to this but satisfies heat insulation, what kind of thing or structure is sufficient.

[0031] It connects with liquid materials mass flow meter (101), and the entrance (20) of said opening-and-closing valve (12) receives supply of the liquid materials (106) of a predetermined mass flow rate. It connects with one entrance (22) of a liquid materials flux control valve (11), and an opening-and-closing valve (12) performs supply and interception to the liquid materials flux control valve (11) of the liquid materials (106) from liquid materials mass flow meter (101) by valve operation.

[0032] It connects with the liquid mass flow meter (113) for solvents which constitutes some solvent feed units (1c), and the entrance (21) of a solvent flux control valve (13) receives supply of the solvent (112) of a predetermined mass flow rate. The solvent flux control valve (13) is connected to the entrance (23) of another side of a liquid materials flux control valve (11), and here [ with valve operation ] Carrying out mass flow rate control of the solvent (112) from the liquid mass flow meter (113) for solvents, when an opening-and-closing valve (12) is closed and supply of liquid materials (106) stops, a liquid materials flux control valve (11) is supplied, and a liquid materials flux control valve (11) and an evaporation part (1B) are purged. (If attached to the details of an operation of these liquids material provisioning part (1A), it mentions later.) In addition, said solvent feed unit (1c) consists of liquid mass flow meter (113) for solvents, a solvent container (111), its incidental facilities, etc.

[0033] The exit (24) of a liquid materials flux control valve (11) and the entrance (7) of an evaporation part (1B) are connected by a lead pipe (9), and said liquid materials (106) or the solvent (112) for a purge is supplied to an evaporation part (1B) through here.

[0034] an evaporation part (1B) -- an inside -- a gimlet -- the evaporation part main part (1a) with which the cave of the \*\* was formed, and the upper part stored by said cave -- a gimlet -- it consists of an internal evaporation block (2) of a \*\*, and a heating heater (3). the inside of an evaporation part (1B) -- the inner wall (let this portion be the evaporation space main part side inside (16)) of said cave, and the gimlet of an internal evaporation block (2) -- between the external surfaces (let this portion be the evaporation space

block side inside (15) of a part (2a) -- a gimlet -- the evaporation space (V) of a \*\* will be formed.

[0035] said gimlet -- [ the form of the evaporation space (V) of a \*\* ] although a cone is made into the example of representation in this example It is sufficient, if the inside (15) of a pyramid or a spindle shape, and the evaporation space (V) hemispherical and prepared in the evaporation part (1B) in short and (16) are formed so that liquid materials (106) may flow down toward the exit (18) of evaporation materials (114) from the entrance (7) of liquid materials (106). thus -- if it says -- a gimlet -- a \*\* -- not but -- \*\* -- the thing of "the shape of a washboard made slanting" may be well used.

[0036] The exit (18) is formed in the upper portion for a while from the lower end of this evaporation space (V), and said exit (18) is connected to the reaction room (102) of CVD equipment through the gas materials outlet (6) formed in the bottom of an evaporation part (1B). And a lot of [ the portion (let this portion be the bottom groove part (17) of evaporation space (V)) below said exit (18) of the lower end of evaporation space (V) / for convenience' sake / certain ] liquid materials (106) are supplied, and it is made to be emergency evacuation \*\*\*\*\* when overflowing without the ability evaporating.

[0037] If the exit (18) of two or more gas materials (114) is equally formed in the bottom peripheral surface of evaporation space (V) although only one place of said exit (18) may be established in the bottom groove part (17) of evaporation space (V) a gimlet -- evaporation materials (114) flow into an exit (18) equally from all the circumferences of the \*\* evaporation space (V), and this will be brought together in one and will be discharged by the supply side (102) from a gas materials outlet (6) -- a gimlet -- the maximum of the evaporation capability of the \*\* evaporation space (V) can be demonstrated now.

[0038] The heating heater (3) is suitably arranged in the evaporation part main part (1a) and the internal evaporation block (2) so that it may face across said evaporation space (V), and it heats evaporation space (V) from inside and outside.

[0039] The entrance (7) currently formed in the upper surface of an evaporation part main part (1a) is connected at the tip of evaporation space (V), and said liquid materials (106) or the solvent (112) passing through the inside of a lead pipe (9) is introduced in evaporation space (V) from here.

[0040] The ring-like through-hole (26) is formed in the circumference of said entrance (7). It is open for free passage to the carrier gas inlet (5), and many carrier blow-of-gas holes (8) which are carrying out the opening to the top part of evaporation space (V) from said ring-like through-hole (26) further are drilled. Carrier gas (108) is lightly sprayed on the liquid materials (106) or the solvent (112) which has flowed in evaporation space (V) from the entrance (7).

[0041] Special processing is given so that the liquid materials (106) which have flowed in evaporation space (V) from the entrance (7) may not flow down the field form of the evaporation space block side inside (15) which constitutes evaporation space (V), and the evaporation space main part side inside (16) immediately.

[0042] When the example is shown, as are shown in drawing 3 and a concentric circle shows to the evaporation space block side inside (15) and the evaporation space main part side inside (16) at much cross-sectional semicircle-like rings or drawing 4 , it is the ring (R) (of course) of the shape of many cross-sectional stage at a concentric circle. it is not what is this much alike and is restricted -- carrying out surface

roughening \*\*\*\* -- the shape of a mesh (the shape of a wire net) -- a hemisphere or a gimlet -- many hollows of a \*\* may be formed and it is formed that the concavo-convex structure or surface treatment which can, in short, check flowing down of liquid materials (106) should just be made.

[0043] Next, it attaches and explains to an operation of this invention. When performing supply in the reaction room (102) of liquid materials (106), it attaches and explains. In this case, while an opening-and-closing valve (12) is held at \*\*\*\*\* and liquid materials (106) are supplied to a liquid materials flux control valve (11), the solvent flux control valve (13) is closed and a solvent (112) is supplied.

[0044] Said liquid materials (106) in a liquid container (105) are pressurized by pressurization gas (107), and send out the liquid materials (106) of the mass flow rate sent and set as the mass flow meter (101) for liquids to an opening-and-closing valve (12). Since an opening-and-closing valve (12) is \*\*\*\*\* as mentioned above, liquid materials (106) pass an opening-and-closing valve (12) as it is, and result in a liquid materials flux control valve (11). The mass flow rate control signal is sent to a liquid materials flux control valve (11) from the mass flow meter (101) for liquids, the degree of valve-opening is adjusted according to said control signal, and a liquid materials flux control valve (11) is supplied to the liquid materials (106) of only a predetermined mass flow rate by the evaporation part (1B).

[0045] The liquid materials (106) which flowed out of the exit (24) of the liquid materials flux control valve (11) are sent to an evaporation part (1B) through a lead pipe (9), and are dropped in evaporation space (V) from the entrance (7) which is carrying out the opening to the top part of evaporation space (V). Many carrier blow-of-gas holes (8) are drilled in the circumference of said entrance (7), it flows in evaporation space (V) from an entrance (7), carrier gas (108) is sprayed on the liquid materials (106) with which mass flow rate control was made, and a drop is dispersed around an entrance (7). the part adheres near an entrance (7) and the remainder falls as it is -- the gimlet of an internal evaporation block (2) -- the peak of a part (2a) is wet, it flows down to the circumference equally circularly, and a liquid film is formed in it.

[0046] On the other hand, although some liquid materials (106) are evaporated near said entrance (7), the remainder adheres to the inside (15) of the circumference, and (16), or flows down, and forms a liquid film. At this time, when there are many amounts of flowing down of liquid materials (106), it is saved up here, being caught in the ring (R) of the shape of a cross-sectional semicircle formed in an inside (15) and (16), and that part spreading the inside of a ring (R). Since this ring (R) is formed also in many [-fold] with concentric circular, without reaching to the bottom groove part (17) of evaporation space (V), the liquid materials (106) which trickled in the usual case will adhere to an inside (15) and (16) altogether, and will constitute a liquid film.

[0047] Since said inside (15) and (16) are heated at the heating heater (3), the liquid film adhering to an inside (15) and (16) is \*\*\*\*(ed) immediately, the membrane formation ingredient which is hard to evaporate also severs it as well as the solvent ingredient which is easy to evaporate, and they evaporate it to \*\*\*\*\*. It is accompanied to the carrier gas (108) which flowed into evaporation space (V), and vaporized evaporation materials (114) pass along an exit (18), and are supplied to a reaction room (102).

[0048] Thus, although liquid materials (106) are controlled strictly and a fixed mass flow rate always supplies

them, liquid materials (106) are supplied superfluously and it may overflow with a certain causes. In that case, it collects on \*\*\*\*\* of the bottom groove part (17) of evaporation space (V), and flows into an exit (18). Liquid materials (106) collected on this bottom groove part (17) are evaporated gradually. Even when it changes into thereby such a state, the supply route of evaporation materials (114) is blockaded, or liquid materials (106) are made not to be sent into a reaction room (102), without being evaporated greatly.

[0049] If supply of liquid materials (106) is completed, an opening-and-closing valve (12) closes, a liquid materials flux control valve (11) will open fully at the same time supply of the liquid materials (106) to a liquid materials flux control valve (11) is stopped, and a solvent flux control valve (13) will open. The solvent (112) for a purge is fed from a solvent container (111) by pressurization gas (110) by this. It is sent to the liquid materials flux control valve (11) of a full open state, flux control of the degree of valve-opening of a solvent flux control valve (13) being controlled and carried out by the mass flow rate control signal from the mass flow meter (113) for solvents, and the portion in which the solvent (112) for a purge carried out conduction is washed.

[0050] The solvent (112) for a purge which carried out conduction of the liquid materials flux control valve (11) flows into the evaporation space (V) of an evaporation part (1a) as it is. Flushing washing of the ring (R) which evaporates in evaporation space (V), is mixed with carrier gas (108), and is formed in an inside (15), (16), and its surface is carried out, and all the remains liquid materials (106) that have adhered also including the membrane formation ingredient which is hard to evaporate are flushed. The evaporation equipment after the use which had become a problem conventionally can be got blocked by this, and a problem can also be completely solved now.

[0051] The jet hole (8) of carrier gas (108) is drilled so that the inside (15) of evaporation space (V) and (16) may consist of stage-like rings (R) and drawing 5 may be open for free passage at the entrance (7) of liquid materials (106). If it does in this way, direct carrier gas (108) will be blown into the liquid materials (106) which have passed through the entrance (7), a lot of small bubbles will be generated in the place which a lot of bubbles were generated and came out of the entrance (7) in liquid materials (106), and it will be pushed out in evaporation space (V) in the state. And the bubbles of a lot of adhere to the inside (15) of evaporation space (V), and (16), burst, and they are gradually evaporated like the above-mentioned with the heat of an inside (15) and (16) while they generate a thin liquid film. The duty which bars that the ring (R) of the shape of said stage flows down when a bubble bursts and it becomes a liquid film is made.

[0052] Next, it attaches and explains to the 2nd working example of the evaporation equipment (100) concerning this invention according to drawing 6. in this case, the gimlet of the internal evaporation block (2) which constitutes evaporation space (V) -- \*\*\*\*\* (30) of liquid materials (106) is formed in the top part of a part (2a), and the jet hole (8) of carrier gas (108) is arranged in \*\*\*\*\* (30) toward that \*\*\*\*\* (30). In the case of a figure, the nozzle (5a) which surround a lead pipe (9) is inserted into \*\*\*\*\* (30), and babbling of the liquid materials (106) which collected in \*\*\*\*\* (30) is carried out.

[0053] It is made to \*\*\*\* some liquid materials (106) by which babbling was carried out from \*\*\*\*\* (30), it flows through the inside (15) of evaporation space (V), and (16), and forms a thin liquid film quickly on it.

Since the inside (15) which forms evaporation space (V), and (16) are maintained at high temperature, evaporation of a liquid film will be smoothly performed by the heat.

[0054] Moreover, the solvent flux control valve (13) of a place which drawing 2 is the 2nd working example of the flow of this invention, and is different from drawing 1 is the solvent side opening-and-closing valve (12b). this -- the liquid materials side opening-and-closing valve (12a) -- right and left -- a flux control valve -- it connects with (11 [since a flux control valve (11) will control liquid materials (106) and a solvent (112) in this case, it is only made a name called a flux control valve]). And the signal line drawn from the mass flow meter (101) for liquid materials and the mass flow meter (113) for solvents can change between a terminal (Sa) and (Sb) with a switch (SW).

[0055] In this case, when supplying liquid materials (106), the liquid materials side opening-and-closing valve (12a) is opened, and the solvent side opening-and-closing valve (12b) is closed. And a switch (SW) is connected to the terminal (Sa) side, the signal line of a flux control valve (11) is connected with the mass flow meter (101) for liquid materials, and a flux control signal is received from the mass flow meter (101) for liquid materials. As for a flux control valve (11), according to the flux control signal from the mass flow meter (101) for liquid materials, the degree of valve-opening will be controlled by this.

[0056] After supply of liquid materials (106) is completed, the liquid materials side opening-and-closing valve (12a) is closed conversely, and the solvent side opening-and-closing valve (12b) is opened. And a switch (SW) is changed to the terminal (Sb) side, the signal line of a flux control valve (11) is connected with the mass flow meter (113) for solvents, and a flux control signal is received from the mass flow meter (113) for solvents. As for a flux control valve (11), according to the flux control signal from the mass flow meter (113) for solvents, the degree of valve-opening will be controlled by this. Since the point except said is the same as that of the case of drawing 1, the details are omitted.

[0057] [Experimental result] As a result of carrying out controlled study using three kinds of pieces of the evaporation equipment (A) of the same size, (B), and (C), the effect of the "stay side structure" in this invention was as in Table 1.

1) The experiment method Liquid materials (106) were supplied to said evaporation equipment (A), (B), and (C), the gas materials (114) discharged from the gas materials outlet (6) were cooled and solidified by liquid nitrogen, and weighing of this was carried out with the electronic balance.

2) Experimental condition \*\* liquid membrane formation materials;Ba(DPM)2, Sr(DPM) 2, butyl acetate solution mixed-solution of a certain kind of ADAKUTO compound Concentration The 0.15M each \*\* evaporation ability rating method; liquid nitrogen Cold trap, Weighing method evaporation equipment (A) by an electronic balance; one gas materials outlet which the inside of the evaporation space of an evaporation part is a flat cone side, and is open for free passage to evaporation space is prepared in the side of the evaporation subordinate part, and took out evaporation materials from this portion outside. (not shown [ evaporation equipment (A) ])

Evaporation equipment (B); one gas materials outlet which the stair-like unevenness ring is processed into the inside of the conic evaporation space of an evaporation part, and is open for free passage to evaporation

space is prepared in the side of the evaporation subordinate part, and took out evaporation materials from this portion outside. (Although evaporation equipment (B) is not illustrated, one gas materials outlet is prepared in the side of the evaporation subordinate part of drawing 4.)

Evaporation equipment (C); the stair-like unevenness ring (R) is processed into the inside of the conic evaporation space (V) of an evaporation part (1B), it is prepared in the bottom of evaporation space (V), and the exit (18) which carries out a free passage hole to a gas materials outlet (6) is prepared four places equally. Evaporation materials (114) are taken out from a gas materials outlet (6). (Refer to drawing 5)

### 3) An evaporation capability measurement result [0058]

[Table 1]

気化器種類	気化器温度	キャリアーガス流量	最大気化能力液体流量
A	250C	200SCCM	0.1g/min
B	250C	200SCCM	0.2g/min
C	250C	200SCCM	0.5g/min

[0059] 1) Vaporizable flux; compared with evaporation equipment (A), the evaporation equipment (B) of this invention improved twice, and the effect of "stay side structure" was proved. However, in the portion near the gas materials outlet, since one gas materials outlet was prepared in the side of the evaporation subordinate part of drawing 5 in this case, although discharged well, since discharge capability fell and the portion from which it is separated was not discharged equally as a whole, vaporizable flux became about 2 times. Then, by raising the discharge capability of gas materials (114) by considering the composition of an exit (18) like drawing 5, the evaporation equipment (C) of this invention improved by 5 times compared with evaporation equipment (A). In connection with expansion of wafer size, and improvement in membrane formation speed, the demand of increase-izing of flux is strong. By (C), the demand can be met as well as especially (B) that is evaporation equipment (100) of this invention.

2) Evaporation temperature; since the materials compound of a ferroelectric thin film is generally a high-boiling point, the evaporation by high temperature is required for it. However, in high temperature, it is easy to carry out thermal cracking. Therefore, if evaporation efficiency improves, it becomes comparatively vaporizable at the degree of low temperature, and this invention is advantageous also at the point.

### [0060]

[Effect of the Invention] [ according to this invention / the inside of evaporation space is formed so that liquid materials may flow down toward the exit of evaporation materials from the entrance of liquid materials, and / an inside ] since the inside has become the stay side structure, for example, unevenness, of making liquid materials stagnating The liquid materials which flowed into evaporation space do not flow down immediately, but stagnate in said inside, and though they contain the membrane formation ingredient which is hard to evaporate even if, they will be gradually evaporated also including a membrane formation ingredient. As a result, supply of the evaporation materials in a stationary state is always attained so that the amount of supply of evaporation materials may not be made to generate instability.

[0061] moreover, the form of evaporation space -- an end -- the gimlet of a spread -- by considering it as a \*\*, a heating contact surface product can be made to be able to increase gradually toward the exit by the

side of gas materials, and the increase in efficiency of evaporation of the liquid materials which flowed, and perfect evaporation can be measured.

[0062] Moreover, a thin liquid film can be quickly formed now on the inside of evaporation space by forming \*\*\*\*\* of liquid materials in the top part of evaporation space, and supply of the evaporation materials in the stationary state by evaporation of a smooth liquid film can be realized.

[0063] Furthermore, it can carry out as [ form / the liquid materials dropped in evaporation space flow down an inside equally, and / materials / by making form of evaporation space into "the shape of a cone", / an equal liquid film ].

---

[Translation done.]